

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)



(51)

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



Int. Cl.:

C 01 b, 31/30

1 j, 1/00

1 m

DEUTSCHES PATENTAMT

(52)

Deutsche Kl.:

12 i, 31/30

12 g, 11/00

21 b, 14/01

(10)

Offenlegungsschrift 1 916 340

(11)

Aktenzeichen: P 19 16 340.7

(21)

Anmeldetag: 29. März 1969

(22)

Offenlegungstag: 8. April 1971

(43)

Ausstellungsriorität: —

(30)

Unionspriorität

(32)

Datum: —

(33)

Land: —

(31)

Aktenzeichen: —

(54)

Bezeichnung: Verfahren zur Herstellung eines Wolframcarbidkatalysators
für Brennstoffzellen

(61)

Zusatz zu: —

(62)

Ausscheidung aus: —

(71)

Anmelder: Licentia Patent-Verwaltungs-GmbH, 6000 Frankfurt

Vertreter: —

(72)

Als Erfinder benannt: Böhm, Harald, Dr., 6370 Oberursel;
Baganz, Dieter, 6079 Spandlingen

Benachrichtigung gemäß Art. 7 § 1 Abs. 2 Nr. 1 d. Ges. v. 4. 9. 1967 (BGBl. I S. 960): —

DT 1 916 340

1916340

L I C E N T I A
Patentverwaltungs-GmbH.
6 Frankfurt (Main), Theodor-Stern-Kai 1

15. 11. 1968
Dr. Lertes /kü

82/507a

Verfahren zur Herstellung eines Wolfram-
carbidkatalysator für Brennstoffzellen

Bei Brennstoffzellen mit saurem Elektrolyten wird zur anodischen Oxydation von Wasserstoff z.B. Wolframcarbid als Katalysator eingesetzt. Zur Herstellung von porösen Gasdiffusionselektroden wird Wolframcarbid kleiner Korngröße in einem thermoplastischen Kunststoff eingelagert. Die Herstellung des Wolframcarbids selbst kann nach verschiedenen Verfahren erfolgen. Es ist z.B. bekannt, Wolframcarbid durch Reaktion von Aktivkohle mit Wolframpulver oder pulverförmigen Wolframoxiden zu

erzeugen, oder die vorgenannten Ausgangsstoffe mit Kohlenwasserstoff zu carburieren.

Die bei dem genannten Verfahren erzielbare katalytische Aktivität reicht jedoch für einen wirtschaftlichen Einsatz in Brennstoffzellen nicht aus.

Der Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur Herstellung von Wolframcarbid anzugeben, das die für einen wirtschaftlichen Einsatz notwendige Aktivität aufweist.

Es wurde nun überraschend gefunden, daß diese Aufgabe dadurch gelöst wird, daß Wolfram oder Wolframoxid bei erhöhter Temperatur mit Kohlenmonoxid carbiert wird.

In einer Abwandlung des Verfahrens werden die genannten Ausgangsstoffe bei erhöhter Temperatur mit einem Gemisch aus Kohlenmonoxid mit Kohlendioxid behandelt. Besonders günstige Ergebnisse werden dabei mit einem Gasgemisch erzielt, daß 0,1 bis 60 % Kohlendioxid enthält. Die Carburierung erfolgt vorteilhaft bei einer Temperatur im Bereich von 600 bis 1500° C, wobei bei Behandlungszeiten von 4 bis 16 Stunden als ausreichend und notwendig anzusehen sind.

Zur Durchführung des Verfahrens wird das Ausgangsmaterial, z.B. pulverförmiges Wolfram, in einen Drehrohrofen mit z.B. Kohlenmonoxid carbiert. Die Behandlungszeit richtet sich nach der Korngröße des Ausgangsmaterials. Bei einer Korngröße von 0,3 ist bei einer Temperatur von 700° C zur vollständigen Carburierung eine Behandlungszeit von 7 bis 10 Stunden notwendig.

Durch die ständige Umlaufung in dem Drehrohrofen wird ein homogenes Endprodukt erzielt, daß ohne weitere Aktivierung nach bekannten Verfahren zu Gasdiffusionslektroden verarbeitet werden kann.

109815/1968

BAD ORIGINAL

In der Figur sind 3 Stromspannungskurven dargestellt, wie sie sich in einer Brennstoffzelle bei der anodischen Oxydation von Wasserstoff an einer Gasdiffusionselektrode aus Wolframcarbid ergeben. Während die Kurven 1 und 2 an nach bekannten Verfahren hergestellten Wolframcarbidelektroden erhalten wurden, gibt die Stromspannungscharakteristik der Kurve 3 den Verlauf wieder, der mit einer Gasdiffusionselektrode unter Verwendung von Wolframcarbid gemäß der Erfindung erhalten wurde.

Aus der Figur ist ohne weiteres die Fortschrittlichkeit des Verfahrens gemäß der Erfindung bezüglich der erhöhten katalytischen Aktivität zu entnehmen.

Gasdiffusionselektroden aus Wolframcarbid gemäß der Erfindung werden besonders vorteilhaft in Brennstoffzellen mit saurem Elektrolyten eingesetzt, wobei als Brennstoff bevorzugt Wasserstoff oder Kohlenmonoxid oxydiert wird.

BAD ORIGINAL

109815/1968

1916340

L I C E N T I A
Patent-Verwaltungs-GmbH.
6 Frankfurt (Main), Theodor-Stern-Kai 1

15.11.1968

Dr. Lertes/kü

82/507a

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Wolframcarbid als Katalysator für Brennstoffzellen, dadurch gekennzeichnet, daß Wolfram oder Wolframoxid bei erhöhter Temperatur mit Kohlenmonoxid carburiert wird.
2. Verfahren zur Herstellung von Wolframcarbid als Katalysator für Brennstoffzellen, dadurch gekennzeichnet, daß Wolfram oder Wolframoxid bei erhöhter Temperatur mit einem Gemisch aus Kohlenmonoxid und Kohlendioxid carbiert wird.
3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß in dem Gasgemisch 0,1 bis 60 % Kohlendioxid enthalten ist.

109815/1968

BAD ORIGINAL

5

4. Verfahr n nach den Ansprüchen 1 bis 3, da-
d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß die
Carburierung bei einer Temperatur im Bereich von
600 bis 1500 ° C erfolgt.
5. Wolframcarbid nach den Ansprüchen 1 bis 4, g e-
k e n n z e i c h n e t durch seine Verwendung
als Elektrode in einer Brennstoffzelle mit saurem
Elektrolyt.
6. Wolframcarbid nach den Ansprüchen 1 bis 5, g e-
k e n n z e i c h n e t durch seine Verwendung
zur Oxydation von Wasserstoff oder Kohlenmonoxid.

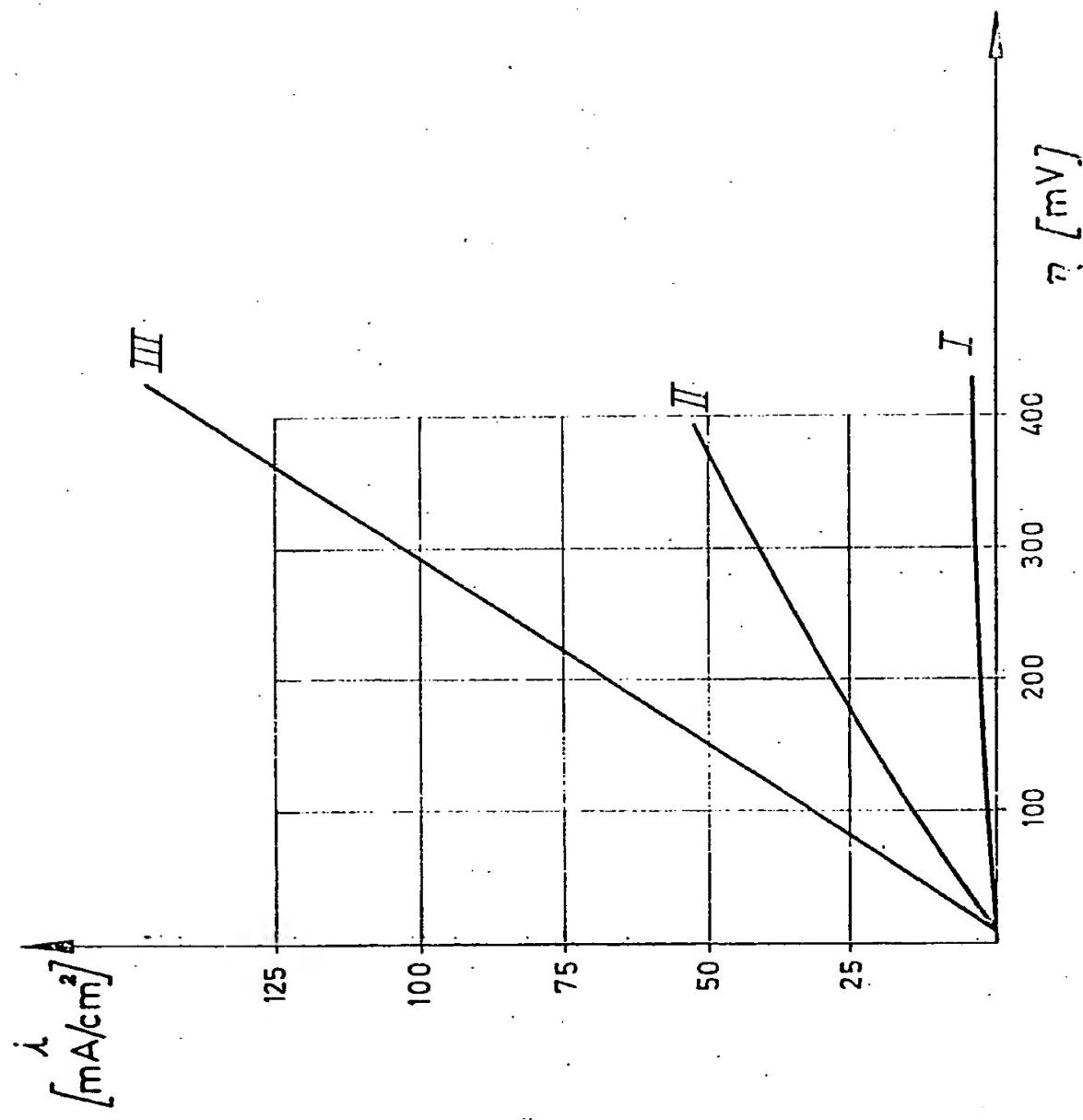
BAD ORIGINAL

109815/1968

Leerseite

1916340

12 1 31-30 A.T. 29.03.1969 O.T.: 8.4.1971



109815 / 1968